

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 60-065466

(43)Date of publication of application : 15.04.1985

(51)Int.Cl.

H01M 4/86

(21)Application number : 58-173900

(71)Applicant : FUJI ELECTRIC CORP RES &
DEV LTD

FUJI ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 20.09.1983

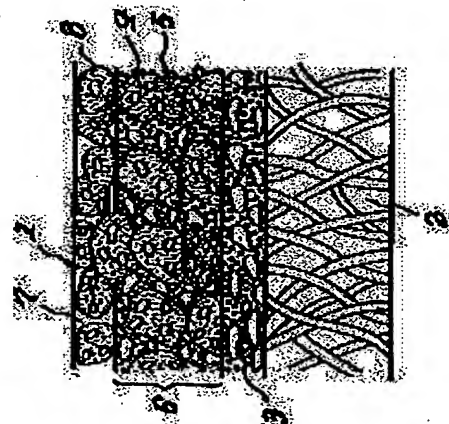
(72)Inventor.: SAKURAI MASAHIRO

(54) GAS DIFFUSION ELECTRODE FOR FUEL CELL**(57)Abstract:**

PURPOSE: To improve cell characteristic by forming a reaction layer of gas diffusion electrode with a part having a high water repellency and gas diffusion characteristic and a part which allows easy penetration of electrolyte containing catalyst particle forming body disposed uniformly in the thickness direction.

CONSTITUTION: A water repellent layer 3 coated with carbon fine powder in the alcohol with addition of fluorine resin powder is provided on a porous electrode base 2, and this layer is further provided with a part 5 having a high water repellency and gas diffusion characteristic with addition of carbon catalyst powder holding platinum in the alcohol, a large amount of fluorine powder and bore forming agent and a part 4 having affinity which allows easy penetration of electrolyte including catalyst particle body 8 formed from the catalyst powder holding the platinum, etc. disposed equally and continuously in the thickness direction to form the gas diffusion electrode 1 for fuel cell as the reaction layer 6.

Accordingly, many three-phase interfaces can be formed on the reaction layer 6 and thereby cell characteristic and operation life characteristic can be improved.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

⑯ 日本国特許庁(JP)

⑰ 特許出願公開

⑱ 公開特許公報(A)

昭60-65466

①Int.Cl.

H 01 M 4/86

識別記号

庁内整理番号

M-7268-5H

④公開 昭和60年(1985)4月15日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

②発明の名称 燃料電池用ガス拡散電極

②特 願 昭58-173900

②出 願 昭58(1983)9月20日

②発 明 者 桜 井 正 博 横須賀市長坂2丁目2番1号 株式会社富士電機総合研究所内

②出 願 人 株式会社富士電機総合研究所 横須賀市長坂2丁目2番1号

②出 願 人 富士電機株式会社 川崎市川崎区田辺新田1番1号

④代 理 人 弁理士 染 谷 仁

明 細 書

1. 発明の名称 燃料電池用ガス拡散電極

2. 特許請求の範囲

1) 多孔性電極基材上にカーボン微粉末又は貴金属を担持したカーボン触媒粉末と多量の弗素樹脂から作られた撥水性が強くガス拡散性の大きい層を設け、この層に少量の弗素樹脂を結合剤として予め作つた貴金属を担持したカーボン触媒粉末の造粒体を圧入して、該多孔性電極基材上に順次に(a)ガス拡散性撥水層、(b)厚さ方向に連続したガス拡散性撥水性部分と厚さ方向に連続したガス拡散性親水性部分とが均等に分布された反応層及び(c)ガス拡散性親水層が存在するような触媒層を形成させてなる燃料電池用ガス拡散電極。

2) 特許請求の範囲第1項記載のガス拡散電極において、撥水性が強くガス拡散性の大きい層の形成に用いられる弗素樹脂がテトラフルオールエチレン粒子であり、そして100~300重量%の量で用いられることを特徴とするガス拡散電極。

3) 特許請求の範囲第1項記載のガス拡散電極において、貴金属を担持したカーボン触媒粉末の造粒体の形成に用いられる弗素樹脂がポリテトラフルオールエチレンであり、そして50~100重量%の量で用いられることを特徴とするガス拡散電極。

4) 特許請求の範囲第1~3項のいずれかに記載のガス拡散電極において、担持される貴金属が白金又はルテニウムであることを特徴とするガス拡散電極。

3. 発明の詳細な説明

〔発明の属する技術分野〕

本発明は、燃料として純粋な水素又は天然ガス等の改質により得られる不純物を含む水素を用い、そして酸化剤として酸素又は空気を用いる燃料電池の多孔性ガス拡散電極に関する。

〔従来技術とその問題点〕

第1図(a)に模式的に示すように、典型的なりん酸型燃料電池1は、水素電極2(燃料極)と空気電極3(酸化剤極)とに挟まれたりん酸電解質4から構成される。りん酸は、通常マトリックスと

呼ばれる多孔質体に含浸されており、この部分は水素イオンを移動させるが、電子を通さない。水素電極2は、通常多孔性カーボン材に支持されたカーボンペーパーよりなり、ここでは外部からカーボン材を介して供給された水素(矢印)が電子を取出して水素イオンとなる。水素イオンはりん酸電解質4内を空気電極3へ移動し、電子は外部回路を通つて空気電極3に達する。空気電極は、同様に多孔性カーボン材に支持されたカーボンペーパーからなり、ここでは外部からカーボン材を介して供給された空気(矢印)が電子を受取り、水素イオンと反応して水を生成する。このように、燃料電池は、いわば水の電気分解と逆の反応を行わせるものである。

これらの反応は、第1図(向)に模式的に示すように、それぞれの電極の触媒層と称される部分の貴金属を担持した触媒5(固体)と電解液であるりん酸6(液体)及び反応ガス7である水素又は空気(気体)が接触する三相界面で起ると考えられる。したがって、優れた電流-電圧特性及び寿命

を得るためには、この三相界面をできるかぎり多数生じさせ、しかも長時間安定に維持することが必要であり、しかして実際の電極は、第1-(1)図のように、主にカーボン粒子9に白金触媒10を担持させた多孔構造とし、これにより反応面積を大きくするとともに、触媒と電解液との界面にガスが拡散されるように工夫されている。

第2図は、このような多孔性ガス拡散電極の代表的な構成断面図を示す。この多孔性ガス拡散電極1は、導電性を有する多孔性カーボン材からなる電極基材2とその上に白金等の貴金属を担持したカーボン触媒に結合剤としてPTFE(ポリテトラフルオロエチレン)を加えた混合物をスクリーン印刷法、ブレード法、スプレー法等のよく知られた方法により薄膜状に塗布することによつて作られた触媒層3から構成されている。触媒層3は、多くの場合、電解液側にはPTFEの添加量を少くして電解液にぬれ易くした層(親水層)4と、ガス拡散側には電解液にぬられないように多量のPTFEを添加した層(撥水層)5と、これらの層

の間に電解液が適度に浸透するとともにガス拡散が確保され、三相界面を形成し、電気化学反応を起させる反応層6とから構成されている。更に、
(電極の基材2として、親水層も含まれた)
前記のガス拡散電極、撥水層に触媒を用いないでカーボン粉末とPTFEより作製した電極、あるいは撥水層を多孔質の弗素樹脂ペーパーで作製した電極等も知られている。

上記のような構成を有するガス拡散電極の反応層6は、触媒粉末とPTFEの均一な組成から作られており、電解液は反応層の厚さ方向にほぼ均等に浸透するために反応層に形成されるべき三相界面が反応層の全体に形成されず、極めて薄い面に作られるという欠点があり、電極特性を十分に引き出し得なかつた。

〔発明の目的〕

本発明は、燃料電池用の多孔性ガス拡散電極における触媒層の反応層部分に多数の三相界面を反応層の厚さ全体にわたって形成させることにより、優れた電流-電圧特性及び寿命特性を有するガス拡散電極を提供することを目的とする。

〔発明の要点〕

本発明は燃料電池用多孔性ガス拡散電極の反応層内に、電解液にぬられないように多量のPTFE等の弗素樹脂を添加して撥水性を強くした厚さ方向に連続したガス拡散性の良好な部分と、触媒に少量のPTFE等の弗素樹脂を添加した厚さ方向に連続した電解液にぬれ易い部分とを均等に分布させることにより多数の三相界面を反応層の厚さ全体にわたり形成させるようにしたものである。

〔発明の実施例〕

第3図は、本発明の多孔性ガス拡散電極の断面拡大図を示すもので、ガス拡散電極1は多孔性基材2と、電解液の浸透を防ぐがガス拡散性を確保した撥水層3と、厚さ方向に連続した電解液を浸透し易くした部分(親水性部分)4及び撥水性が強く且つガス拡散性を大きくした部分(撥水性部分)5が均等に分布して電気化学反応を起す反応層6と、電解液にぬれ易い層(親水層)7とから構成される。

本発明の好ましい具体例によれば、多孔性ガス拡散電極は、まず、カーボン微粉末（例えばグラファイト、カーボンブラック等）又は白金、ルテニウム等の貴金属を担持したカーボン触媒粉末と多量（例えば70～400重量％、好ましくは100～300重量％）の弗素樹脂（例えばPTFE、ポリヘキサフルオールエチレン、ヘキサフルオールプロピレンと弗化ビニリデンとの共重合体、テトラフルオールエチレンとヘキサフルオールプロピレンとの共重合体等）粉末を純水又はアルコール（例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール等）に均一に分散させて得られた分散液を多孔性電極基材（例えばカーボン繊維シート、カーボンペーパー、カーボン粉末等）2の上にスプレー法、ブレード法、スクリーン印刷法、静電塗装法等の適当な方法によつて例えば約100μの厚さの層に塗布し、乾燥して水又はアルコールを除去することによつて形成される。次に、このように形成された層の上に、弗素樹脂（前述したものと同一）を結合剤とし、白金、ルテニウム等の貴金属を担持した触

媒粉末から予め造粒した触媒造粒体（粒子径10～20μ、弗素樹脂含有量30～150重量％、好ましくは50～100重量％）の純水又はアルコール分散液がスプレー法、ブレード法、スクリーン印刷法、静電塗装法等の適当な方法によつて例えば80～100μの厚さに塗布され、乾燥して水又はアルコールが除去され、次いで塗布面を5～20kg/cm²の圧力に加圧することにより触媒造粒体を60～80μの深さに埋込められる。

このようにして、多孔性電極基材2の上に(a)カーボン微粉末又は貴金属を担持したカーボン触媒と多量の弗素樹脂とから作られた撥水性の大きい撥水層3、(b)厚さ方向に連続した撥水性の大きいガス拡散性撥水性部分5及び圧入された貴金属を担持した触媒造粒体8からなる電解液を浸透し易くした親水性部分4が均等に分布された反応層6及び(c)主として触媒造粒体からなる親水層7が存在するような触媒層が形成される。上記の例で形成された撥水層3の厚さは約20μであり、また親水層7の厚さは約20～40μである。もちろん、触

媒層における撥水層、反応層及び親水層は任意に選定することができる。また、カーボン微粉末、貴金属を担持した触媒粉末、弗素樹脂粒子の大きさは、従来技術で用いられている大きさであつてよい。

上記のように構成された構造体は、次いで弗素樹脂の溶融温度にて熱処理され、これにより弗素樹脂の部分融着により強固な構造の多孔性ガス拡散電極が作製される。

〔発明の効果〕

本発明によれば、燃料電池用ガス拡散電極の電気化学的反応を起す反応層全体に撥水性が強く且つガス拡散性を大きくした部分と電解液を浸透し易くした部分とを厚さ方向に連続して均等に配置させたために、反応層の厚さ全体に多数の三相界面を形成させることができた。この結果、電極の電流-電圧特性を10～15%、寿命特性を5～10倍向上させることができた。

本発明は、りん酸を電解液とする燃料電池の電極における貴金属を担持したカーボン触媒につい

て記載したが、アルカリ性電解液燃料電池の電極におけるニッケル、銀等を触媒とした電極においても容易に適用できることは当業者には容易に想到できるところである。

4. 図面の簡単な説明

第1図(a)は、りん酸型燃料電池の構造模式図であり、第1図(b)は触媒、電解液及び反応ガスの三相が接する細孔内の状況構式図である。

第1図において、1…りん酸型燃料電池、2…水素電極、3…空気電極、4…りん酸電解質、5…触媒、6…りん酸、7…反応ガス、8…三相界面

第2図は、従来技術のガス拡散電極の構成断面図である。

第2図において、1…ガス拡散電極、2…電極基材、3…触媒層、4…親水層、5…撥水層、6…反応層

第3図は本発明のガス拡散電極の断面拡大構式図である。

第3図において、1…ガス拡散電極、2…多孔性基材、3…撥水層、4…親水性部分、5…撥水性部分、6…反応層、7…親水層、8…触媒遊粒体

特許出願人 株式会社 富士電機総合研究所

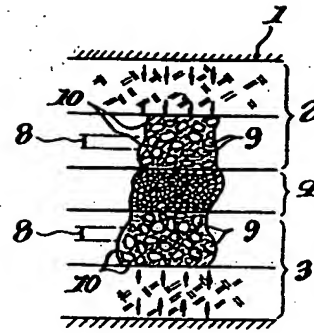
同 富士電機製造株式会社

代理人 弁理士 染谷

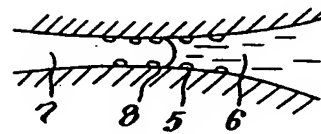


第1図

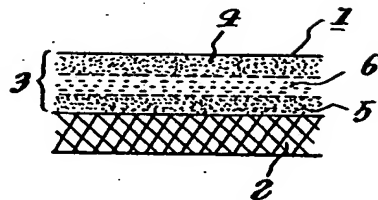
(a)



(b)



第2図



第3図

